

EPOXY RESIN COMPOSITION

Publication number: JP11310689

Publication date: 1999-11-09

Inventor: ITO TAKAHIRO; TAGUCHI HIROKANE

Applicant: TOAGOSEI CO LTD

Classification:

- International: C08K3/34; C08K5/00; C08L63/00; C08K3/00;
C08K5/00; C08L63/00; (IPC1-7): C08L63/00; C08K3/34;
C08K5/00

- European:

Application number: JP19980132740 19980427

Priority number(s): JP19980132740 19980427

Report a data error here

Abstract of JP11310689

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a one-pack type composition capable of manifesting excellent preservation stability and low-temperature curability without being influenced by a resin, a diluent, an additive or a mixing method used and useful as an adhesive, a coating material, etc., by using a zeolite and a specific alkoxide compound in combination. **SOLUTION:** This composition contains (A) an epoxy resin having two or more epoxy groups in the molecule, (B) a solid dispersed type amine adduct-based latent curing agent (e.g. a product obtained by reacting an amine compound with an epoxy compound, an isocyanate compound or a urea compound), (C) an alkoxide compound of titanium, zirconium or boron e.g. a compound represented by the formula M<1> (OR)_n R_{4-n} [M<1> is Ti or Zr; R is an alkyl; (n) is 1-4] and (D) a zeolite (e.g. the one having <=100 μ m average particle diameter). The composition preferably contains the components C and D in respective amounts of 0.1-20 pts.wt. and 1-100 pts.wt. based on the component A.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-310689

(43) 公開日 平成11年(1999)11月9日

(51) Int.Cl.⁶

識別記号

F I

C 0 8 L 63/00

C 0 8 L 63/00

C

C 0 8 K 3/34

C 0 8 K 3/34

5/00

5/00

審査請求 未請求 請求項の数 2 FD (全 6 頁)

(21) 出願番号

特願平10-132740

(71) 出願人 000003034

東亞合成株式会社

東京都港区西新橋1丁目14番1号

(22) 出願日 平成10年(1998)4月27日

(72) 発明者 伊藤 隆浩

愛知県名古屋市港区船見町1番地の1 東
亞合成株式会社名古屋総合研究所内

(72) 発明者 田口 裕務

愛知県名古屋市港区船見町1番地の1 東
亞合成株式会社名古屋総合研究所内

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 優れた保存安定性および低温硬化性を有する1液型エポキシ樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 1分子内にエポキシ基を2個以上有するエポキシ樹脂、固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤、チタン、ジルコニアまたはホウ素のアルコキシド化合物およびゼオライトを含有するエポキシ樹脂組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】(1) 1分子内にエポキシ基を2個以上有するエポキシ樹脂、(2) 固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤、(3) チタン、ジルコニウムまたはホウ素のアルコキシド化合物および(4) ゼオライトを含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項2】1分子内にエポキシ基を2個以上有するエポキシ樹脂100重量部を基準として、金属アルコキシド化合物の含有割合が0.1~20重量部であり、ゼオライトの含有割合が1~100重量部であることを特徴とする請求項1記載のエポキシ樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は新規なエポキシ樹脂組成物に関するものである。更に詳しくは保存安定性に優れ、且つ、加熱によってすみやかに硬化し、性能の優れた硬化物を与えるエポキシ樹脂組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】エポキシ樹脂は、その優れた電気的、機械的および化学的性質により電気絶縁材料、接着剤、各種成型品あるいは塗料等の多方面に用いられている。エポキシ樹脂組成物の形態としては、主剤成分と硬化剤成分を分けて製造し、作業直前に混合して使用する2液型及び主剤成分と硬化剤成分をはじめから一成分に混合して製造した1液型があるが、2液型の場合には、混合比率の正確さや混合の均一さに常に不安がつきまとうばかりでなく、混合した組成物の粘度が混合直後から経時に上昇するので、自動装置による取扱いが困難という問題があった。このような問題を解決したのが1液型エポキシ樹脂組成物である。

【0003】1液型エポキシ樹脂組成物を得る方法としては、比較的反応性の低い組成物を低温で保管する低温貯蔵法、硬化剤をマイクロカプセル内部に封入し、加熱または加圧で放出させるマイクロカプセル化法、硬化剤にケトイミン等の水分と反応してアミンを遊離する化合物を用いる湿気硬化法、または、所定温度以上で活性化する熱反応性硬化剤を使用する潜在性硬化剤法等、種々提案されているが、短い時間で硬化し、且つ、保存安定性が良好な組成物を得る方法としては、潜在性硬化剤法が有効である。潜在性硬化剤法で用いる硬化剤として、ジシアンジアミド、二塩基酸ジヒドラジド、三フッ化ホウ素-アミンアダクト、グアナミン類、および、メラミン等が挙げられるが、より低温で硬化し、且つ、保存安定性の良好なエポキシ樹脂組成物を得るための硬化剤としては、固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤が提案されている。しかしながら、低温硬化性と保存安定性を共に備えるものの、使用するエポキシ樹脂、または、希釈剤や、充填材等の添加剤の選択、あるいは、三本ロール等の均一化に有利な混合方法の採用によって保存安

定性が著しく損なわれる等の欠点を有し、必ずしも満足できるものではなかった。

【0004】この欠点を改良するため、固体分散型潜在性硬化剤の表面をアルミニウムアルコレートやアルミニウムキレート化合物で処理した組成物や(特開昭63-223027)、固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤の表面をホウ酸エステル化合物でコーティングした組成物(特開平6-73156)、固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤を加えたエポキシ樹脂に金属のアルコキシド化合物を添加した組成物(特開平7-196776)、または、固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤を加えたエポキシ樹脂にゼオライトを添加した組成物(特開平6-200227)等が提案されているが、保存安定性の面で充分満足できるまでには至っていなかった。

【0005】このように、使用するエポキシ樹脂、または、希釈剤や、充填材等の添加剤、あるいは、三本ロール等の混合方法によって左右されることなく優れた保存安定性、および、低温硬化性を有し、更に、硬化後の硬化物の性能に優れた1液型エポキシ樹脂組成物が大いに要望されていた。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は使用するエポキシ樹脂、または、希釈剤や、充填剤等の添加剤、あるいは、三本ロール等の混合方法によって左右されることなく優れた保存安定性および低温硬化性を有する1液型エポキシ樹脂組成物を提供することである。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは鋭意研究を重ねた結果、エポキシ樹脂組成物においてゼオライトと特定のアルコキシド化合物とを併用することが、上記課題を解決する上で極めて有効であることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0008】即ち、本発明は、(1) 1分子内にエポキシ基を2個以上有するエポキシ樹脂、(2) 固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤、(3) チタン、ジルコニウムまたはホウ素のアルコキシド化合物および(4) ゼオライトを含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物である。

【0009】

【発明の実施の形態】本発明におけるエポキシ樹脂は、1分子当たり2個以上のエポキシ基を有するものであり、1分子当たりのエポキシ基数は平均値である。好ましいエポキシ樹脂として、以下のものがある。即ち、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールAD、カテコール、レゾルシノール等の多価フェノール、または、グリセリンやポリエチレングリコール等の多価アルコールとエピクロロヒドリンとを反応させて得られるポリグリシジルエーテル；p-ヒドロキシ安息香酸、 β -ヒドロキシナフトエ酸のようなヒドロキシカルボン酸と

エピクロルヒドリンとを反応させて得られるグリシジルエーテルエステル；フタル酸、テレフタル酸のようなポリカルボン酸とエピクロルヒドリンとを反応させて得られるポリグリシジルエステル；更には、エポキシ化フェノールノボラック樹脂、エポキシ化クレゾールノボラック樹脂、エポキシ化ポリオレフィン、環式脂肪族エポキシ樹脂等である。

【0010】本発明における固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤は、室温ではエポキシ樹脂に不溶性の固体で、加熱によって可溶化し、硬化剤として機能するものである。好ましい固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤は、アミン化合物とエポキシ化合物との反応生成物（アミン-エポキシアダクト系）、アミン化合物とイソシアネート化合物または尿素化合物との反応生成物（尿素型アダクト系）、及びこれらの硬化剤の表面をイソシアネート化合物や酸性化合物で処理したものである。

【0011】本発明における潜在性硬化剤の製造原料として用いるエポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、カテコール、レゾルシノール等の多価フェノールまたはグリセリンやポリエチレングリコールのような多価アルコールとエピクロルヒドリンとを反応させて得られるポリグリシジルエーテル； α -ヒドロキシ安息香酸、 β -ヒドロキシナフトエ酸のようなヒドロキカルボン酸とエピクロルヒドリンとを反応させて得られるグリシジルエーテルエステル；フタル酸、テレフタル酸のようなポリカルボン酸とエピクロルヒドリンとを反応させて得られるポリグリシジルエステル；4, 4'-ジアミノジフェニルメタンやm-アミノフェノール等から得られるグリシジルアミン化合物；更には、エポキシ化フェノールノボラック樹脂、エポキシ化クレゾールノボラック樹脂、エポキシ化ポリオレフィン等の多官能性エポキシ化合物や、ブチルグリシジルエーテル、グリシジルメタクリレート等の单官能性エポキシ化合物等がある。

【0012】本発明における潜在性硬化剤の製造原料として用いるアミン化合物は、エポキシ基またはイソシアネート基と付加反応し得る活性水素を1分子内に1個以上有し、且つ1級アミノ基、2級アミノ基、3級アミノ基の中から選ばれた置換基を少なくとも1分子内に1個以上有するものであれば良い。このような、アミン化合物の好ましい例を以下に示す。

【0013】例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、n-プロピルアミン、2-ヒドロキシエチルアミノプロピルアミン、シクロヘキシルアミン、ジメチルアミノプロピルアミン、ジメチルアミノエチルアミン、ジエチルアミノエチルアミン、N-メチルピペラジン等のようなアミン化合物や、2-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール等のイミダ

ゾール化合物等のような、1分子内に3級アミノ基を有する1級もしくは2級アミン類や、2-ジメチルアミノエタノール、1-メチル-2-ジメチルアミノエタノール、1-フェノキシメチル-2-ジメチルアミノエタノール、2-ジエチルアミノエタノール、1-ブトキシメチル-2-ジメチルアミノエタノール、1-(2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル)-2-メチルイミダゾール、1-(2-ヒドロキシ-3-ブトキシプロピル)-2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-(2-ヒドロキシ-3-ブトキシプロピル)-2-メチルイミダゾール、1-(2-ヒドロキシ-3-ブトキシプロピル)-2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-(2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル)-2-フェニルイミダゾリン、1-(2-ヒドロキシ-3-ブトキシプロピル)-2-フェニルイミダゾリン、2-(ジメチルアミノメチル)フェノール、2, 4, 6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール、N- β -ヒドロキシエチルモルホリン、2-ジメチルアミノエタンチオール、2-メルカプトピリジン、2-メルカプトベンゾイミダゾール、2-メルカプトベンゾチアゾール、4-メルカプトピリジン、N, N-ジメチルアミノ安息香酸、N, N-ジメチルグリシン、ニコチン酸、イソニコチン酸、ピコリン酸、N, N-ジメチルグリシンヒドラジド、N, N-ジメチルプロピオン酸ヒドラジド、ニコチン酸ヒドラジド、イソニコチン酸ヒドラジド等のような、1分子内に3級アミノ基を有するアルコール類、フェノール類、チオール類、カルボン酸類、ヒドラジド類がある。

【0014】更に、上記のエポキシ化合物とアミン化合物とを付加反応せしめ、本発明における潜在性硬化剤を製造する際に、第3成分として1分子内に活性水素を2個以上有する活性水素化合物を添加することもできる。このような活性水素化合物の好ましい例として、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ヒドロキノン、カテコール、レゾルシノール、ピロガロール、フェノールノボラック樹脂等の多価フェノール類；トリメチロールプロパン等の多価アルコール類；トリエチレンテトラミン、シクロヘキシルアミン、ピペラジン、アニリンの様なアミン類；アジピン酸、フタル酸等の多価カルボン酸類；1, 2-ジメルカプトエタン、2-メルカプトエタノール、1-メルカプト-3-フェノキシ-2-プロパノール、メルカプト酢酸、アントラニル酸、乳酸等がある。

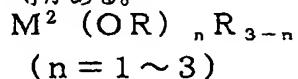
【0015】本発明における潜在性硬化剤の製造の際に用いられるイソシアネート化合物としては、例えば、n-ブチルイソシアネート、イソプロピルイソシアネート、フェニルイソシアネート、ベンジルイソシアネート等のような单官能イソシアネート化合物；ヘキサメチレンジイソシアネート、トルイレンジイソシアネート、1, 5-ナフタレンジイソシアネート、ジフェニルメタ

ン-4, -4' 一ジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、p-フェニレンジイソシアネート1, 3, 6-ヘキサメチレントリイソシアネート、ビシクロヘプタントリイソシアネート等のような多官能イソシアネート化合物；更には、これらの多官能イソシアネート化合物と活性水素化合物との反応によって得られる、末端イソシアネート基含有化合物等も用いることができ、このような化合物の例としては、トルイレンジイソシアネートとトリメチロールプロパンとの反応により得られる末端イソシアネート基を有する付加反応物、トルイレンジイソシアネートとペンタエリスリトールとの反応で得られる末端イソシアネート基を有する付加反応物等がある。

【0016】本発明における潜在性硬化剤は、上記の(a)エポキシ化合物またはイソシアネート化合物及び(b)アミン化合物の2成分、あるいは(a)エポキシ化合物またはイソシアネート化合物、(b)アミン化合物及び(c)活性水素化合物の3成分を混合し、室温から20℃の温度において反応させた後、固化、粉碎するか、あるいは、メチルエチルケトン、ジオキサン、テトラヒドロフラン等の溶媒中で反応させ、脱溶媒後、固体物を粉碎することにより容易に得ることができる。

【0017】本発明における固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤の市販品として以下のものがある。

【0018】例えば、アミン-エポキシアダクト系としては、「アミキュア PN-23」、「アミキュア PN-H」、「アミキュア MY-24」（以上、味の素株式会社商品名）、「ハードナー H-3615S」、「ハードナー H-3293S」（以上、エー・シ・アール株式会社商品名）、「ノバキュア HX-3721」、「ノバキュア HX-3742」（以上、旭化成株式会社商品名）、「Ancamine 2014AS」、「Ancamine 2014FG」（以上、パシフィックアンカー ケミカル商品名）等がある。また、尿素型アダクトとしては、「フジキュア FXE-1000」、「フジキュア FXR-1030」（以上、富士化成株式会社商品名）等がある。*



R : アルキル基

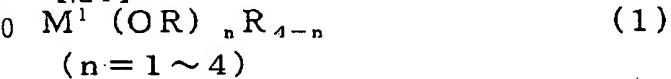
【0023】アルキル基（R）としては、炭素数が1以上のものであれば何でも使用できるが、炭素数2~20のものが好ましい。1つの化合物中のアルキル基の種類が同じであっても異なっていても良いし、飽和であっても不飽和であっても良い。更に、化合物中の2つ以上のアルキル基が結合し環状構造を持つものであっても、任意に選ばれたこれらの化合物の2つ以上の縮合物であっても何ら問題はない。本発明の組成物において上記(1)または(2)で表わされるアルコキシド化合物を

* 【0019】本発明におけるゼオライトは、アルミナシリケートからなる含水金属塩であり、天然品、合成品のどちらでもかまわないが、水分や極性溶媒等を吸着する能力を持つものが好ましい。この吸着能力をより効果的に発現するため、本発明における樹脂に均一に分散することが好ましく、ゼオライトの好ましい平均粒子径は100μm以下、より好ましくは40μm以下である。平均粒子径が細かすぎるとエポキシ樹脂組成物の粘度を上げる効果が高くなり、本発明の効果を発揮させる量を添加した場合に粘度上昇が大きく、作業性を悪化するので、平均粒子径は0.01μm以上であるのが好ましい。上記の特性を有する好ましいゼオライトとして、例えば、「モレキュラーシーブ 3A」、「モレキュラーシーブ 4A」、「モレキュラーシーブ 5A」、「モレキュラーシーブ 13X」（以上、ユニオン昭和株式会社商品名）、「ゼオラム 3A」および「ゼオラム 4A」（以上、東ソー株式会社商品名）等がある。好ましいゼオライトの添加量は、エポキシ樹脂100重量部当たり1から100重量部であり、より好ましくは1から60重量部の範囲である。ゼオライトの添加量が少なすぎると本発明の組成物の保存安定性が低下し、逆に、多すぎるとエポキシ樹脂組成物の粘度が上昇し、作業性を悪化する恐れがある。

【0020】本発明における金属アルコキシド化合物は、チタン、ジルコニウムまたはホウ素のアルコキシド化合物であり、下記一般式(1)または(2)で表されるものが好ましい。

【0021】

【化1】



M¹ : チタンまたはジルコニウム

M² : ホウ素

R : アルキル基

【0022】

【化2】

(2)

初めとして、チタン、ジルコニウム又はホウ素のアルコキシドを2種以上併用することも可能である。

【0024】本発明におけるチタンのアルコキシド化合物の好ましい例としては、テトラアルキルチタネート等があり、例えば、テトラメチルチタネート、テトラエチルチタネート、テトラ-n-プロピルチタネート、テトライソプロピルチタネート(TPT)、テトラ-n-ブチルチタネート(TBT)、テトライソブチルチタネート、テトラ-tert-ブチルチタネート、テトラ-n

一ペンチルチタネート、テトラ-*n*-ヘキシリチタネート、テトライソオクチルチタネート(TOT)、テトラ-*n*-ラウリルチタネートおよびこれらのオリゴマー等がある。これらのなかで特に炭素数が3から4のアルキル基を有するもの、例えば、テトライソプロピルチタネート(TPT)やテトラ-*n*-ブチルチタネート(TBT)等が好ましい。

【0025】本発明におけるジルコニウムのアルコキシド化合物の好ましい例としては、テトラアルキルジルコネート等があり、例えば、テトラエチルジルコネート、テトラ-*n*-プロピルジルコネート、テトライソプロピルジルコネート(TPZ)、テトラ-*n*-ブチルジルコネート、テトラ-*tert*-ブチルジルコネート、テトラ-*n*-ペンチルジルコネート、テトラ-*tert*-ペンチルジルコネート、テトラ-*n*-ヘプチルジルコネート、テトラ-*n*-オクチルジルコネート、テトラ-*n*-ステアリルジルコネートおよびこれらのオリゴマー等がある。これらのなかで特に炭素数が3から4のアルキル基を有するもの、例えば、テトライソプロピルジルコネート(TPZ)、テトラ-*n*-ブチルジルコネートが好ましい。

【0026】本発明におけるホウ素のアルコキシド化合物の好ましい例としては、トリアルキルボレート等が使用でき、例えば、トリメチルボレート、トリエチルボレート、トリ-*n*-プロピルボレート、トリイソプロピルボレート、トリ-*n*-ブチルボレート、トリクレジルボレート、トリ-*tert*-ブチルボレート、トリヘキサデシルボレート、トリセチルボレート、トリステアリルボレート、トリフェニルボレート、トリトリルボレート、トリベンジルボレートおよびこれらのオリゴマー等がある。これらのなかで特に炭素数が3から4のアルキル基を有するもの、例えば、トリイソプロピルボレート(TPB)、トリ-*n*-ブチルボレート(TBB)が好ましい。

【0027】これらのアルコキシド化合物は、添加量が少なすぎると保存安定性が低下し、多すぎるとエポキシ樹脂の硬化速度を低下させたり、逆に保存安定性を悪化させるので、添加量はエポキシ樹脂100重量部に対して0.1から20重量部、好ましくは0.1から15重量部の範囲である。

【0028】なお本発明のエポキシ樹脂組成物には、必要に応じて充填材、希釈剤、溶剤、顔料、可とう性付与剤、カップリング剤、酸化防止剤等の各種添加剤を加えることができる。

【0029】また、本発明の組成物の硬化物は、ゼオライトや特定のアルコキシド化合物を含有させても何ら特性上問題なく、エポキシ樹脂が備える本来の優れた性能を発揮し、接着剤、塗料、電気絶縁材料、積層構造体等の広い分野にその特長を活かして利用することができ

る。

【0030】

【実施例】以下、例を挙げて本発明をより具体的に説明する。以下の実施例において、保存安定性は所定温度(40°C)の恒温槽保存で初期粘度の2倍を越えるまでの日数を測定することで、硬化性の評価は120°Cまたは150°Cでのゲルタイムを測定することで評価した。粘度はJISK 6833に準じて測定した。以下の実施例及び比較例において、部は、重量部を表す。

10 【0031】実施例1

ビスフェノールA型エポキシ樹脂「エピコート828」(油化シェルエポキシ株式会社商品名)100部に、「アミキュアPN-23」(味の素株式会社商品名)20部と「アエロジル#200」(日本アエロジル株式会社商品名)を1部加えたものに、「モレキュラーシーブ3A」(ユニオン昭和株式会社商品名)を10部、アルコキシド化合物としてテトライソプロピルチタネート(TPT)を1部加えて混合し、更に、この組成物を三本ロールを用いてより均一に分散させ、エポキシ樹脂組成物とした。この組成物のゲルタイムおよび保存安定性を測定した結果を下記表1に示す。

20 【0032】実施例2

実施例1の組成物に、反応性希釈剤として「YED-122」(油化シェルエポキシ株式会社商品名)を10部加えて混合し、この組成物を三本ロールを用いてより均一に分散させ、エポキシ樹脂組成物とした。この組成物のゲルタイムおよび保存安定性を測定した結果を下記表1に示す。

30 【0033】実施例3

実施例2の組成物に、フィラーとしてタルクを20部加えて混合し、この組成物を三本ロールを用いてより均一に分散させ、エポキシ樹脂組成物とした。これらの組成物のゲルタイムおよび保存安定性を測定した結果を書きについて表1に示す。

40 【0034】実施例4~7

実施例3の組成物のアルコキシド化合物をテトラ-*n*-ブチルチタネート(TBT)、テトライソオクチルチタネート(TOT)、テトライソプロピルジルコネート(TPZ)、テトラ-*n*-ブチルボレート(TBB)に置き換えて混合し、この組成物を三本ロールを用いてより均一に分散させエポキシ樹脂組成物とした。これらの組成物のゲルタイムおよび保存安定性を測定した結果を下記表1に示す。

50 【0035】比較例1~7

実施例1~7のそれぞれの組成物の「モレキュラーシーブ3A」(ユニオン昭和株式会社商品名)を加えずに混合し、この組成物を三本ロールを用いて、より均一に分散させエポキシ樹脂組成物とした。この組成物のゲルタイム、および、保存安定性を測定した結果を下記表1に示す

【0036】比較例8～10

実施例1～3のそれぞれの組成物をアルコキシド化合物を加えずに混合し、この組成物を三本ロールを用いて、より均一に分散させエポキシ樹脂組成物とした。この組*

* 成物のゲルタイムおよび保存安定性を測定した結果を下記表1に示す。

【0037】

【表1】

	エピコート 807 部	YED- 122 部	アミキュア PN-23 部	タルク 部	エロジル #200 部	モレキュラ ーシーブ3A 部	金属アルコキシド*	初期粘度 ボ'イズ 秒	ゲルタイム		保存安定性 40°C	
									120°C 秒	150°C 秒		
実施例1	100	0	20	0	1	10	TPT	1	840	60	30	>3ヶ月
実施例2	100	10	20	0	1	10	TPT	1	670	70	40	>3ヶ月
実施例3	100	10	20	20	1	10	TPT	1	940	70	40	>3ヶ月
実施例4	100	10	20	20	1	10	TBT	1	940	70	40	>3ヶ月
実施例5	100	10	20	20	1	10	TOT	1	940	70	40	>3ヶ月
実施例6	100	10	20	20	1	10	TPZ	1	950	70	40	>3ヶ月
実施例7	100	10	20	20	1	10	TBB	1	940	70	40	>3ヶ月
比較例1	100	0	20	0	1	0	TPT	1	710	60	30	<2週間
比較例2	100	10	20	0	1	0	TPT	1	560	70	40	<2週間
比較例3	100	10	20	20	1	0	TPT	1	780	70	40	<2週間
比較例4	100	10	20	20	1	0	TBT	1	790	70	40	<2週間
比較例5	100	10	20	20	1	0	TOT	1	780	70	40	<2週間
比較例6	100	10	20	20	1	0	TPZ	1	790	70	40	<2週間
比較例7	100	10	20	20	1	0	TBB	1	780	70	40	<2週間
比較例8	100	0	20	0	1	10	—	—	840	60	30	<2週間
比較例9	100	10	20	0	1	10	—	—	670	70	40	<2週間
比較例10	100	10	20	20	1	10	—	—	940	70	40	<2週間

【0038】エピコート807：ビスフェノールA型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ株式会社製）

YED-122：ブチルフェニルグリシジルエーテル（油化シェルエポキシ株式会社製）

アミキュアPN-23：固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化剤（味の素株式会社製）

エロジル#200：微粉シリカ（日本エロジル株式会社製）

モレキュラーシーブ3A：合成ゼオライト（ユニオン昭和株式会社製）

TPT：テトライソプロピルチタネート（三菱瓦斯化学株式会社製）

TBT：テトラン-*n*-ブチルチタネート（三菱瓦斯化学株式会社製）

TOT：テトライソオクチルチタネート（三菱瓦斯化学株式会社製）

TPZ：テトライソプロピルジルコネート（試薬）

TBB：トリ-*n*-ブチルボレート（試薬）

【0039】上記表1からわかるように、金属アルコキ

シド或いはゼオライトのどちらかを配合しなかった比較例1～10においては、保存安定性が2週間以内であるのに対して、本願発明のエポキシ樹脂組成物である実施例1～7においては、保存安定性が3ヶ月を越えており、比較例に比較して格段に長い。本願発明のエポキシ樹脂組成物は、上記表1に示した通り、低温硬化性が十分実用的水準にあるばかりでなく、その他の接着特性、電気絶縁特性もエポキシ樹脂本来の特性を保持していることが確認されている。

【0040】

【発明の効果】本発明のエポキシ樹脂組成物は、保存安定性と低温硬化性の両方に優れており、例えば40°Cで3ヶ月以上安定に保存することができ、且つ、120°C～150°Cで3分以内で硬化しうるという性能を示す。更に、エポキシ樹脂、希釈剤、充填材等の配合成分を如何に選択しても、又三本ロール等の均一化に有利な混合方法を採用しても、保存安定性又は低温硬化性が従来のエポキシ樹脂組成物のように損なわれることない。